

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-206736

(43)Date of publication of application : 26.07.1994

(51)Int.Cl.

C03C 3/064  
C03C 10/02  
C03C 10/04  
C04B 35/18  
H05K 1/03

(21)Application number : 05-235437

(71)Applicant : YAMAMURA GLASS CO LTD  
KYOCERA CORP

(22)Date of filing : 26.08.1993

(72)Inventor : TAGUCHI TOMOYUKI  
KURIBAYASHI HIDEYUKI  
TANAKA ATSUSHI  
KONAGA TOMOMI  
MORIGAMI YOSHIHIRO

(30)Priority

Priority number : 04335554 Priority date : 21.11.1992 Priority country : JP

## (54) GLASS COMPOSITION FOR LOW-TEMPERATURE BAKING SUBSTRATE AND SUBSTRATE PRODUCED FROM THE COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a composition for a substrate, having high bending strength and low dielectric constant and loss tangent and capable of being baked together with a low-resistant conductive paste by compounding Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, Li<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>O and K<sub>2</sub>O at specific ratios and heat-treating the mixture to precipitate mullite as a main crystal phase and one or more kinds of forsterite, spinel and sapphirin as subsidiary crystal phases.

CONSTITUTION: Component raw materials are weighed and compounded to get a of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 20-35wt.% of SiO<sub>2</sub>, 5-15wt.% of B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 5-20wt.% of MgO, 0-2wt.% each of Li<sub>2</sub>O, Na<sub>2</sub>O and K<sub>2</sub>O (Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O is 1-4wt.% and the presence of at least two of the above oxides is essential) and the mixture is melted at 1550-1580° C. The molten mixture is formed in the form of flakes with a water-chilled roll and finely pulverized. In the case of producing a substrate, the powder is dispersed in an organic solvent and incorporated with a plasticizer, a green sheet is formed from the obtained slurry and the sheet is cut, laminated and baked in air to obtain a low-temperature baked substrate having a bending strength of  $\geq 23\text{kgf/mm}^2$ .

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 21.06.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3375181

[Date of registration] 29.11.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 6 - 2 0 6 7 3 6

(43) 公開日 平成6年 (1994) 7月26日

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 3 C	3/064			
	10/02			
	10/04			
C 0 4 B	35/18	Z 8924-4 G		
H 0 5 K	1/03	B 7011-4 E		
審査請求	未請求	請求項の数 1 4	F D	(全 1 7 頁)

(21) 出願番号 特願平5-235437

(22) 出願日 平成5年 (1993) 8月26日

(31) 優先権主張番号 特願平4-335554

(32) 優先日 平4 (1992) 11月21日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000178826

山村硝子株式会社

兵庫県西宮市浜松原町2番21号

(71) 出願人 000006633

京セラ株式会社

京都府京都市山科区東野北井ノ上町5番地の22

(72) 発明者 田口 智之

兵庫県西宮市浜松原町2番21号山村硝子株式会社内

(74) 代理人 弁理士 今村 元

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 低温焼成基板用ガラス組成物およびそれから得られる基板

(57) 【要約】

【目的】 低温焼成基板の製造に使用される結晶化ガラス組成物において、Ag、Ag-Pd、Au、Cu等の低抵抗導体ペーストと同時焼成でき、高抗折強度 (23 kgf/mm<sup>2</sup> 以上) でかつ低誘電率、低誘電正接等の物性を有する基板用組成物の提供を目的とする。

【構成】 熱処理することにより、ムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル、サフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、重量%表示で、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が45~58、SiO<sub>2</sub> が20~35、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が5~15、MgOが5~20、アルカリ金属酸化物が1~4からなる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）からなる低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項2】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）

銅、バナジウム、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種：0.1～5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項3】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、銅、バナジウム、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1～5重量部をフィラーとして添加、混合した低温焼成基板用組成物。

【請求項4】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中もしくは中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項5】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中もしくは中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項6】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%  
SiO<sub>2</sub> : 20～35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%  
MgO : 5～20%  
Li<sub>2</sub>O : 0～2%  
Na<sub>2</sub>O : 0～2%  
K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O：1～4%

（少なくとも2種必須）

銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種：0.1～5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、

3

その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項7】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45~58%  
SiO<sub>2</sub> : 20~35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5~15%  
MgO : 5~20%  
Li<sub>2</sub>O : 0~2%  
Na<sub>2</sub>O : 0~2%  
K<sub>2</sub>O : 0~2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O : 1~4%

(少なくとも2種必須)

モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種：0.1~5%からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項8】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45~58%  
SiO<sub>2</sub> : 20~35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5~15%  
MgO : 5~20%  
Li<sub>2</sub>O : 0~2%  
Na<sub>2</sub>O : 0~2%  
K<sub>2</sub>O : 0~2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O : 1~4%

(少なくとも2種必須)

バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物の内少なくとも1種：0.1~5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にAg、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項9】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45~58%  
SiO<sub>2</sub> : 20~35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5~15%  
MgO : 5~20%  
Li<sub>2</sub>O : 0~2%

4

Na<sub>2</sub>O : 0~2%

K<sub>2</sub>O : 0~2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O : 1~4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1~5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項10】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45~58%  
SiO<sub>2</sub> : 20~35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5~15%  
MgO : 5~20%  
Li<sub>2</sub>O : 0~2%  
Na<sub>2</sub>O : 0~2%  
K<sub>2</sub>O : 0~2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O : 1~4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1~5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項11】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45~58%  
SiO<sub>2</sub> : 20~35%  
B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5~15%  
MgO : 5~20%  
Li<sub>2</sub>O : 0~2%  
Na<sub>2</sub>O : 0~2%  
K<sub>2</sub>O : 0~2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O : 1~4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1~5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にAg、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、中性雰囲気中で焼成して作製される低温

10

20

30

40

50

焼成基板。

【請求項12】 ガラスの熱処理後、抗析強度が23 kgf/mm<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする請求項1または2に記載の低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項13】 ガラスとフィラーの混合物の熱処理後、抗析強度が23 kgf/mm<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする請求項3に記載の低温焼成基板用組成物。

【請求項14】 抗析強度が23 kgf/mm<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする請求項4乃至11のいずれかに記載の低温焼成基板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、半導体素子やコイル(L)、コンデンサー(C)、抵抗(R)等のチップ部品等を搭載し、これらをAg、Ag-Pd、Au、Cu等の低抵抗導体配線により相互接続することのできる低温焼成多層基板用のガラス組成物に関する。

【0002】

【従来の技術及びその課題】従来、コンピューターや民生機器等に使用される基板材料はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (アルミナ)が一般的であったが、アルミナは焼結温度が約1600℃と高く、同時焼成用配線導体にタングステン又はモリブデン等の高融点金属材料を用いている。しかし、これらの高融点金属材料では電気抵抗が比較的高いため、電気抵抗の低い、Ag、Ag-Pd、Au、Cu等の使用が望まれていた。そこで、焼成温度が約850～約1050℃と低く、上記低抵抗導体を使用可能な、低温焼成基板が各種提案されている。

【0003】特開昭61-31348号公報「低温焼成セラミックス」では、CaO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>系ガラス55～60%とアルミナ等のフィラー40～45%とを混合し、750～850℃の低温で焼成した基板が報告されている。又、特開昭59-83957号公報「結晶化ガラス体」では、重量%でSiO<sub>2</sub> 40～52、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 27～37、MgO 10～20、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 2～8、CaO 2～8、ZrO<sub>2</sub> 0.1～3からなる結晶化ガラス成分を粉碎してフリット化し、成形後900～950℃の低温で焼成した基板が報告されている。しかし、前者はガラス自体の強度が弱いために、基板強度は15～19 (kgf/mm<sup>2</sup>) と低く、後者は、主結晶相であるコーゼライトそのものの強度が弱いために、基板強度は17～21 (kgf/mm<sup>2</sup>) と低い。このように、従来の技術においては、ガラスセラミックスの強度が弱く、多層基板とした場合に割れ易く、取り扱いに注意を要する等の問題があった。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記の課題をふまえた上で開発された低温焼成基板用ガラス組成物に関する。すなわち、酸化物の重量%表示で：

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 45～58%

SiO<sub>2</sub> : 20～35%

B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 5～15%

MgO : 5～20%

Li<sub>2</sub>O : 0～2%

Na<sub>2</sub>O : 0～2%

K<sub>2</sub>O : 0～2%

但し、Li<sub>2</sub>O+Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O: 1～4%

(少なくとも2種必須) からなり、熱処理することによってムライトを主結晶相とし、フォーステライト、スピネル及びサフィリンの内、少なくとも1種を副結晶相として析出するガラス組成物であることを特徴とする。

10

【0005】加えて、本発明の低温焼成基板用ガラス組成物は、上記基本組成にさらに銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種を着色成分として加えることを特徴とし、上記基本ガラス組成物または上記着色成分を加えたガラス組成物を成形後、Ag、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、大気中で焼成することにより白色あるいは着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

20

【0006】また、本発明の低温焼成基板用ガラス組成物は、上記基本組成にさらにモリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種を着色成分として加えることを特徴とし、上記基本ガラス組成物または上記着色成分を加えたガラス組成物を成形後、Cuを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、水素を含む還元性雰囲気中で焼成することにより無着色又は着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

30

【0007】また、本発明の低温焼成基板用ガラス組成物は、上記基本組成にさらにバナジウム、モリブデン、鉄の酸化物の内、少なくとも1種を着色成分として加えることを特徴とし、上記基本ガラス組成物または上記着色成分を加えたガラス組成物を成形後、Ag、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、中性雰囲気(窒素等の不活性雰囲気)中で焼成することにより白色あるいは着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

40

【0008】さらに、本発明の低温焼成基板用組成物は、上記基本ガラス組成物に銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内、少なくとも1種を着色フィラーとして添加、混合することを特徴とし、それを成形後、Ag、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、大気中で焼成することにより着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

【0009】また、本発明の低温焼成基板用組成物は、上記基本ガラス組成物にモリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内、少なくとも1種を着色フ

50

イラーとして添加、混合することを特徴とし、それを成形後、Cuを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、水素を含む還元性雰囲気中で焼成することにより着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

【0010】また、本発明の低温焼成基板用組成物は、上記基本ガラス組成物にバナジウム、モリブデン、鉄の酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内、少なくとも1種を着色フィラーとして添加、混合することを特徴とし、それを成形後、Ag、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成し、中性雰囲気中で焼成することにより着色した低温焼成基板を得ることを特徴とする。

【0011】また、本発明の低温焼成基板の抗折強度は23kgf/mm<sup>2</sup>以上であることを特徴とする。

【0012】以下、本発明を詳細に説明する。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は結晶化ガラス中のムライト(3Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・2SiO<sub>2</sub>)、スピネル(MgO・Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)及びサフィリン(4MgO・5Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・2SiO<sub>2</sub>)の構成成分であり、又、残存ガラスの中間酸化物である。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が45wt%未満では、ムライトの結晶化度が低く、強度が23kgf/mm<sup>2</sup>に達しない。逆に58wt%を越えると熔融温度が高くなり、失透しやすくなる。

【0013】SiO<sub>2</sub>は結晶化ガラス中のムライト、フォステライト(2MgO・SiO<sub>2</sub>)及びサフィリンの構成成分であり、又、残存ガラスの骨格を形成する。SiO<sub>2</sub>が20wt%未満であると、これらの結晶が析出しにくくなる。逆に35wt%を越えるとフォステライト相の代りにコーゼライト相が生成し、強度が低くなる。

【0014】B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は融剤として使用され、5wt%未満では熔融温度が高くなりすぎる。逆に15wt%を越えると結晶化度が下がり、強度が低下する。

【0015】MgOはガラス作製時の熔融温度を下げるとともに、結晶化ガラス中のフォステライト、スピネル及びサフィリンの構成成分であり、トータルの結晶化度を高める働きをする。5wt%未満では、これらの結晶相の析出量が少ないため強度が上らず、また、熔融温度も高くなる。逆に20wt%を越えると分相領域に入り、熔融時、失透してしまう。

【0016】強度、熔融性、成形性、結晶相のバランス等を総合的に勘案すると、上記成分中のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は47~53wt%、SiO<sub>2</sub>は24~33wt%、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は5~15wt%、MgOは7~14wt%であることが好ましい。

【0017】また、R<sub>2</sub>O(R=Li、Na、Kの内、少なくとも2種必須)成分を添加することにより、高温時におけるガラスの電気伝導度が大きくなるため、電気熔融の適用が可能となり、クリーンな状態でガラスを熔融することが可能となる。R<sub>2</sub>O成分は、単独で用いると結晶化ガラス焼結体の誘電正接(tanδ)を増大さ

せ、絶縁抵抗を低下させる。しかし、2成分以上を同時に添加し、混合アルカリ効果を利用するとtanδの増大及び絶縁抵抗の低下を抑制することができる。R<sub>2</sub>Oは合計で1wt%未満では、電気熔融時キャリアーとしての効果がない。逆にLi<sub>2</sub>O、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>Oのいずれかが2wt%を越えるか、その合計が4wt%を越えると低温焼成基板のtanδの増大及び絶縁抵抗の低下が起こるばかりでなく、熱膨張係数が大きくなりすぎる。上記の理由でR<sub>2</sub>Oは1~4wt%とするが、その構成比は少なくとも2種が0.3wt%以上であることが好ましい。また、R<sub>2</sub>Oを2成分とする場合はどの2種の組合せでも良いが、混合アルカリ効果が最も顕著に現われるLi<sub>2</sub>OとK<sub>2</sub>Oの組合せが好ましい。R<sub>2</sub>Oを3成分添加すると更に効果は著しい。

【0018】上記基本成分の他に以下の着色成分をガラス組成中に加えても良い。銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物は大気中で焼成を行う場合の着色成分である。銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆に5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【0019】また、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物は水素を含む還元性雰囲気中で焼成を行う場合の着色成分である。モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆に5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【0020】また、バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物は中性雰囲気中で焼成を行う場合の着色成分である。バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物の内、少なくとも1種が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆に5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【0021】なお、これら大気中焼成、還元性雰囲気中焼成、中性雰囲気中焼成における着色成分については、上述のようにガラスの成分として加えても、添加物(フィラー)として加えても、同様の効果が得られる。着色成分をフィラーとして基本ガラス組成物の粉末に添加、混合する場合は、酸化物粉末、炭酸塩、硫酸塩、水酸化物等の金属塩化合物粉末、金属粉末のいずれを用いてもよい。

【0022】また、上記のガラス組成にさらに熔融性向上のための合計で3wt%以下のCaO、BaO、ZnO、結晶化促進剤としての合計で5wt%以下のZrO<sub>2</sub>、SnO<sub>2</sub>、結晶化促進剤としての作用の他に融剤としての作用も持つ5wt%以下のF<sub>2</sub>等を加えても良い。

【0023】

【発明の作用】本願発明の組成のガラス組成物は、Ag、Ag-Pd、Au、Cu等の低抵抗導体材料と共に約850～約1050℃で焼成可能であり、焼成後ムライトを主結晶相とし、副結晶相としてフォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を有し、抗折強度 $23\text{ kgf/mm}^2$ 以上の高強度基板が得られる。また、誘電率は7以下とアルミナに比べて低く、信号ノイズの低減にも効果を有する。熱膨張係数は $50\sim 70\times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ であり、アルミナに近く、半導体素子やLCR等の部品搭載においても問題は生じない。また、着色成分を使用した場合には、遮光性を有するため半導体素子を光から保護すると共にアSEMBL上の取扱いが容易となる。

#### 【0024】

【実施例及び比較例】常法に従い、表に示す目標組成となるように各成分原料を適宜秤量、調合してバッチを調製し、表中に示す溶融温度で2～3時間溶解し、溶融ガラスとする。この溶融ガラスを水冷ロールでフレック状に成形する。このガラスをボールミル等で微粉砕し、平均粒径約 $2\sim 5\mu\text{m}$ のガラス微粉体とする。また、着色成分をフィラーとして添加する場合には、このガラス微粉体と混合し、本発明の低温焼成基板用組成物微粉体を得る。

【0025】基板を作製する場合には、前記微粉体をトルエン、エタノール等の溶剤と共にボールミル中で分散した後、ポリビニルブチラール、ポリアクリル酸エステル等のバインダー及びDBP、DOP等の可塑剤を加えスラリー状にし、ドクターブレード法でグリーンシートに成形する。これを切断・積層後、大気中、水素を含む還元性雰囲気中もしくは中性雰囲気中で $200^{\circ}\text{C/h}$ の昇温速度で $850\sim 1050^{\circ}\text{C}$ まで上げ、この焼成温度で2時間保持し低温焼成基板を得、誘電率、誘電正接及び絶縁抵抗を以下に示す方法で測定した。その結果を表1乃至表6（実施例）及び表7乃至表8（比較例）に示す。

す。

【0026】また、示差熱分析(DTA)、熱膨張係数、結晶相、抗折強度については本実施例及び比較例で得られた微粉体を用いて以下に示す方法で測定した。その結果を表1乃至表6（実施例）及び表7乃至表8（比較例）に示す。

#### 【0027】①誘電率、誘電正接(tanδ)

各粉末を前述の通り基板に成形したものに電極を施し、 $25^{\circ}\text{C}-60\%\text{RH}$ 、 $1\text{MHz}$ においてインピーダンスメーターで測定した。

#### 【0028】②絶縁抵抗

各粉末を前述の通り基板に成形したものに電極を施し、 $25^{\circ}\text{C}-60\%\text{RH}$ 、 $50\text{V}$ において絶縁抵抗計で測定した。

#### 【0029】③示差熱分析(DTA)

各粉末 $500\text{mg}$ を示差熱分析装置の試料ホルダーに入れ、室温から $20^{\circ}\text{C/min}$ の昇温速度で上昇させ、転移点、軟化点、結晶化ピーク温度を測定した。

#### 【0030】④熱膨張係数

各粉末をペレットで棒状に加圧成形した後、DTAで測定した結晶化ピーク温度まで $200^{\circ}\text{C/h}$ で昇温し、その温度で2時間保持し焼結したサンプルを室温から $10^{\circ}\text{C/min}$ の昇温速度で上昇させ、熱膨張係数( $30\sim 400^{\circ}\text{C}$ の平均値、単位： $10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ )を測定した。

#### 【0031】⑤結晶相

前述の④で得られたサンプルと同じ物を再び微粉体とした後、粉末X線回析により測定した。

#### 【0032】⑥抗折強度

前述の④で得られたサンプルと同じ物をJIS-R1601に準じて加工し、3点曲げによりその強度を測定した。

#### 【0033】

【表1】

実施例 表1

		(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		50.0	50.0	45.0	50.0	57.0
$\text{SiO}_2$		25.0	20.0	25.0	34.5	26.0
$\text{B}_2\text{O}_3$		10.5	13.0	15.0	7.0	6.0
$\text{MgO}$		11.5	13.7	12.5	6.0	7.0
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	0.7	0.7	—	0.7	1.0
	$\text{Na}_2\text{O}$	0.7	0.7	0.5	0.7	—
	$\text{K}_2\text{O}$	0.6	0.6	0.5	0.6	1.0
$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{NiO}$		0.5/0.3	—	—	—	—
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		0.2/0	0.5/0.5	—	—	—
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		—	—	1.0/0.5	—	—
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		—	—	—	0.3/0.2	0/2.0
$\text{CaO}$		—	0.3	—	—	—
$\text{SnO}_2$		—	—	—	—	—
ガラス溶融温度 (°C)		1555	1550	1550	1585	1600
D	転移点 (°C)	696	670	687	710	705
T	軟化点 (°C)	815	790	809	842	833
A	結晶化ピーク温度 (°C)	917	899	908	948	931
T M A	熱膨張係数 (30~400 °C) ( $\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ )	62	64	59	57	61
主	ムライト	○	○	○	○	○
副	スピネル	○	○	○	—	—
副	フォルステライト	○	○	○	○	○
副	ザフィリン	—	—	—	—	○
抗折強度 ( $\text{Kgf}/\text{mm}^2$ )		24	24	23	24	25
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$
誘電率		6.5	6.6	6.5	6.4	6.4
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		15	15	18	15	19
焼成雰囲気		Air	Air	$\text{N}_2-\text{H}_2$	$\text{N}_2-\text{H}_2$	$\text{N}_2$
基板の色		黒	黒	黒	黒	黒

【0034】

【表2】

実施例 表2

		(6)	(7)	(8)	(9)	(10)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		48.0	49.0	47.0	48.0	53.0
$\text{SiO}_2$		24.0	26.0	29.0	21.0	26.0
$\text{B}_2\text{O}_3$		7.0	11.0	11.0	12.0	8.0
$\text{MgO}$		19.0	10.0	11.0	16.0	10.0
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	1.0	—	0.6	0.7	0.7
	$\text{Na}_2\text{O}$	1.0	1.0	0.6	0.6	0.7
	$\text{K}_2\text{O}$	—	1.0	0.7	0.6	0.6
$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{NiO}$		—	—	—	0.1/0	0.3/0.2
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		—	—	—	0/1.0	0.2/0.1
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		—	2.0/0	0.1/0	—	0/0.2
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		—	—	—	—	—
$\text{CaO}$		—	—	—	—	—
$\text{SnO}_2$		—	—	—	—	—
ガラス熔融温度 (°C)		1570	1560	1550	1555	1585
D	転移点 (°C)	690	696	695	673	705
T	軟化点 (°C)	811	814	824	790	832
A	結晶化ピーク温度 (°C)	902	908	917	876	924
T	熱膨張係数					
M	(30~400 °C)	63	60	58	64	61
A	( $\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ )					
主	ムライト	○	○	○	○	○
副	スピネル	○	○	○	○	○
副	フォルステライト	—	○	○	—	○
副	サフィリン	—	—	—	—	○
抗折強度 ( $\text{Kgf}/\text{mm}^2$ )		23	24	23	23	26
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$
誘電率		6.7	6.6	6.6	6.7	6.6
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		19	18	15	15	15
焼成雰囲気		Air	Air	$\text{N}_2-\text{H}_2$	$\text{N}_2$	Air
基板の色		白	黒	黒	黒	黒

【0035】

【表3】

実施例 表3

		(11)	(12)	(13)	(14)	(15)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		54.0	50.0	51.0	47.0	49.0
$\text{SiO}_2$		21.0	28.0	26.0	32.0	26.0
$\text{B}_2\text{O}_3$		11.0	8.0	7.0	8.0	11.0
$\text{MgO}$		7.0	7.5	9.0	8.0	10.0
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	0.7	0.7	0.7	1.0	—
	$\text{Na}_2\text{O}$	0.7	0.7	0.7	2.0	1.0
	$\text{K}_2\text{O}$	0.6	0.6	0.6	1.0	1.0
$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{NiO}$		—	—	—	0.5/0.5	—/2.0
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		—	0/0.5	—	—	—
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		—	—	1.0/2.0	—	—
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		0/5.0	0/4.0	1.0/1.0	—	—
$\text{CaO}$		—	—	—	—	—
$\text{SnO}_2$		—	—	—	—	—
ガラス溶融温度 (°C)		1570	1560	1565	1550	1565
D	転移点 (°C)	694	701	700	668	698
T	軟化点 (°C)	816	829	824	781	820
A	結晶化ピーク温度 (°C)	916	931	923	889	911
T M A	熱膨張係数 (30~400 °C) ( $\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ )	64	59	60	54	61
主	ムライト	○	○	○	○	○
副	スピネル	—	—	○	○	○
副	フォスファイト	○	○	○	○	○
副	サフィリン	○	—	—	—	—
抗折強度 ( $\text{Kg}/\text{mm}^2$ )		25	24	25	23	24
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$
誘電率		6.5	6.5	6.6	6.6	6.6
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		15	15	15	20	18
焼成雰囲気		$\text{N}_2 - \text{H}_2$	$\text{N}_2$	$\text{N}_2 - \text{H}_2$	$\text{N}_2 - \text{H}_2$	$\text{N}_2 - \text{H}_2$
基板の色		黒	黒	黒	黒	黒

【0036】

【表4】

実施例 表4

		(16)			(17)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		50.5	$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		50.0
$\text{SiO}_2$		32.0	$\text{SiO}_2$		24.0
$\text{B}_2\text{O}_3$		7.0	$\text{B}_2\text{O}_3$		10.0
$\text{MgO}$		7.0	$\text{MgO}$		9.0
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	0.6	$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	0.7
	$\text{Na}_2\text{O}$	0.7		$\text{Na}_2\text{O}$	0.7
	$\text{K}_2\text{O}$	0.7		$\text{K}_2\text{O}$	0.6
$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Ni}_2\text{O}_3$		0/1.0	$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Ni}_2\text{O}_3$		-
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		-	$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		-
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		-	$\text{MnO}_2/\text{Co}_3\text{O}_4$		0/5.0
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		-	$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		-
$\text{CaO}$		-	$\text{CaO}$		-
$\text{SnO}_2$		0.5	$\text{SnO}_2$		-
ガラス溶融温度 (°C)		1580	ガラス溶融温度 (°C)		1560
D	転移点 (°C)	703	D	転移点 (°C)	686
T	軟化点 (°C)	835	T	軟化点 (°C)	807
A	結晶化ピーク温度 (°C)	939	A	結晶化ピーク温度 (°C)	903
T	熱膨張係数		T	熱膨張係数	
M	(30~400 °C)	59	M	(30~400 °C)	62
A	( $\times 10^{-7}/\text{°C}$ )		A	( $\times 10^{-7}/\text{°C}$ )	
主	ムライト	○	主	ムライト	○
副	スピネル	-	副	スピネル	○
副	フォーステライト	○	副	フォーステライト	○
副	サフィリン	-	副	サフィリン	-
抗折強度 ( $\text{Kgf}/\text{mm}^2$ )		24	抗折強度 ( $\text{Kgf}/\text{mm}^2$ )		24
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$	絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$
誘電率		6.5	誘電率		6.6
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		15	$\tan \delta (\times 10^{-4})$		15
焼成雰囲気		Air	焼成雰囲気		$\text{N}_2 \sim \text{H}_2$
基板の色		黒	基板の色		青黒

【0037】

【表5】

実施例 表5

		(18)				(19)	(20)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (wt%)		47.5		Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (wt%)		47.5	47.5
SiO <sub>2</sub>		32.0		SiO <sub>2</sub>		32.0	32.0
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		8.5		B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		8.5	8.5
MgO		8.0		MgO		8.0	8.0
R <sub>2</sub> O	Li <sub>2</sub> O	1.0		R <sub>2</sub> O	Li <sub>2</sub> O	1.0	1.0
	Na <sub>2</sub> O	2.0			Na <sub>2</sub> O	2.0	2.0
	K <sub>2</sub> O	1.0			K <sub>2</sub> O	1.0	1.0
フ	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /NiO	0.5/0.5		フ	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	—	—
イ	CuO/V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	—		イ	CuO/V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	—	0/0.2
ラ	MnO <sub>2</sub> /CoO	—		ラ	MnO <sub>2</sub> /Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	—	—
ロ	WO <sub>3</sub> /MoO <sub>3</sub>	—		ロ	WO <sub>3</sub> /MoO <sub>3</sub>	0.5/0.5	0/0.8
	CaO	—			CaO	—	—
	SnO <sub>2</sub>	—			SnO <sub>2</sub>	—	—
ガラス溶融温度 (℃)		1550		ガラス溶融温度 (℃)		1550	1550
D	転移点 (℃)	666		D	転移点 (℃)	666	666
T	軟化点 (℃)	778		T	軟化点 (℃)	778	778
A	結晶化ピーク温度 (℃)	890		A	結晶化ピーク温度 (℃)	890	890
T	熱膨張係数			T	熱膨張係数		
M	(30~400℃)	54		M	(30~400℃)	54	54
A	(×10 <sup>-7</sup> /℃)			A	(×10 <sup>-7</sup> /℃)		
主	ムライト	○		主	ムライト	○	○
副	スピネル	○		副	スピネル	○	○
副	フォーステライト	○		副	フォーステライト	○	○
副	サフィリン	—		副	サフィリン	—	—
抗折強度 (Kgf/cm <sup>2</sup> )		23		抗折強度 (Kgf/cm <sup>2</sup> )		23	23
絶縁抵抗 (Ω・cm)		>10 <sup>14</sup>		絶縁抵抗 (Ω・cm)		>10 <sup>14</sup>	>10 <sup>14</sup>
誘電率		6.6		誘電率		6.6	6.6
tanδ (×10 <sup>-4</sup> )		20		tanδ (×10 <sup>-4</sup> )		20	20
焼成雰囲気		Air		焼成雰囲気		N <sub>2</sub> -H <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>
基板の色		黒		基板の色		黒	黒

【0038】

【表6】

実施例 表6

		(21)			(22)	(23)
$Al_2O_3$ (wt%)		47.5	$Al_2O_3$ (wt%)		47.5	47.5
$SiO_2$		32.0	$SiO_2$		32.0	32.0
$B_2O_3$		8.5	$B_2O_3$		8.5	8.5
$MgO$		8.0	$MgO$		8.0	8.0
$R_2O$	$Li_2O$	1.0	$R_2O$	$Li_2O$	1.0	1.0
	$Na_2O$	2.0		$Na_2O$	2.0	2.0
	$K_2O$	1.0		$K_2O$	1.0	1.0
フ	$NiCO_3$	0.5	フ	$Fe_2O_3/Ni_2O_3$	—	0.5 /0.5
イ	$MnCO_3$	0.5	イ	$CuO/V_2O_5$	—	—
ヲ	$MnO_2/CoO$	—	ヲ	Co	0.5	—
丨	$WO_3/MoO_3$	—	丨	W	0.5	—
	CaO	—		CaO	—	—
	$SnO_2$	—		$SnO_2$	—	—
ガラス溶融温度 (°C)		1550	ガラス溶融温度 (°C)		1550	1550
D	転移点 (°C)	666	D	転移点 (°C)	666	666
T	軟化点 (°C)	778	T	軟化点 (°C)	778	778
A	結晶化ピーク温度 (°C)	890	A	結晶化ピーク温度 (°C)	890	890
T	熱膨張係数		T	熱膨張係数		
M	(30~400 °C)	54	M	(30~400 °C)	54	54
A	( $\times 10^{-7}/^{\circ}C$ )		A	( $\times 10^{-7}/^{\circ}C$ )		
主	ムライト	○	主	ムライト	○	○
副	スピネル	○	副	スピネル	○	○
副	フォルステライト	○	副	フォルステライト	○	○
副	サフィリン	—	副	サフィリン	—	—
抗折強度 (Kgf/mm <sup>2</sup> )		23	抗折強度 (Kgf/mm <sup>2</sup> )		23	23
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot cm$ )		$>10^{14}$	絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot cm$ )		$>10^{14}$	$>10^{14}$
誘電率		6.6	誘電率		6.6	6.6
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		20	$\tan \delta (\times 10^{-4})$		20	20
焼成雰囲気		Air	焼成雰囲気		$N_2-H_2$	$N_2-H_2$
基板の色		黒	基板の色		黒	黒

【0039】

【表7】

比較例 表7

		(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		43.0	60.0	48.0	44.0	51.0
$\text{SiO}_2$		24.0	24.0	18.0	37.0	23.0
$\text{B}_2\text{O}_3$		15.0	7.0	15.0	8.0	4.0
$\text{MgO}$		11.5	7.0	14.0	8.5	13.0
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	0.5	0.7	1.0	-	1.0
	$\text{Na}_2\text{O}$	0.5	0.7	-	1.0	1.0
	$\text{K}_2\text{O}$	0.5	0.6	1.0	-	1.0
$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{NiO}$		-	-	1.0/0	1.0/0	2.0/3.0
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		-	-	0/1.0	-	1.0/0
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		-	-	-	-	-
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		0/5.0	-	0/1.0	0/0.5	-
ガラス熔融温度 (°C)		1515	1600以上	1545	1560	1600
D	転移点 (°C)	700	熔融不可	674	715	706
T	軟化点 (°C)	829		784	859	836
A	結晶化ピーク温度 (°C)	912		877	938	938
T M A	熱膨張係数 (30~400 °C) ( $\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ )	60		65	55	62
主	ムライト	○		○	○	○
副	スピネル	-		-	-	○
副	フォースタライト	○		-	-	-
副	サフィリン	-		-	-	○
副	コーゼライト	-		-	○	-
抗折強度 ( $\text{Kg}/\text{mm}^2$ )		18		16	19	21
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$>10^{14}$		$>10^{14}$	$>10^{14}$	$>10^{14}$
誘電率		6.3		6.7	6.6	6.8
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		15		18	43	19
焼成雰囲気		$\text{N}_2 - \text{H}_2$		$\text{N}_2$	$\text{N}_2$	Air
基板の色		黒		黒	黒	黒

【0040】

【表8】

比較例 表8

		(6)	(7)	(8)	(9)	
$\text{Al}_2\text{O}_3$ (wt%)		48.0	47.0	46.0	50.0	
$\text{SiO}_2$		22.0	30.0	23.5	20.0	
$\text{B}_2\text{O}_3$		16.5	13.0	5.0	12.0	
$\text{MgO}$		7.5	4.0	22.5	10.0	
$\text{R}_2\text{O}$	$\text{Li}_2\text{O}$	1.5	—	0.7	0.7	
	$\text{Na}_2\text{O}$	2.0	3.0	0.7	0.7	
	$\text{K}_2\text{O}$	1.5	1.0	0.6	0.6	
	$\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{NiO}$	—	0.5/0	0/1.0	—	
$\text{CuO}/\text{V}_2\text{O}_5$		—	0.5/0	—	—	
$\text{MnO}_2/\text{CoO}$		0.3/0.3	0.5/0.5	—	6.0/0	
$\text{WO}_3/\text{MoO}_3$		0.2/0.2	—	—	—	
ガラス溶融温度 (°C)		1535	1590	1600以上	1575	
D	転移点 (°C)	571	698	溶融不可	687	
T	軟化点 (°C)	788	834		809	
A	結晶化ピーク温度 (°C)	872	926		892	
T	熱膨張係数					
M	(30~400 °C)	66	58		63	
A	( $\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ )					
主	ムライト	○	○		○	
副	スピネル	—	—		○	
副	フォスフェイト	○	—		○	
副	サフィリン	—	—		—	
副	コーゼライト	—	—		—	
抗折強度 (Kgf/mm <sup>2</sup> )		18	19		21	
絶縁抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )		$<10^{14}$	$<10^{14}$		$<10^{14}$	
誘電率		7.4	6.7		7.0	
$\tan \delta (\times 10^{-4})$		29	26		15	
焼成雰囲気		$\text{N}_2-\text{H}_2$	Air		$\text{N}_2-\text{H}_2$	
基板の色		黒	黒		黒	

【0041】更に、実施例に示した組成の粉末を用いて、多層配線基板を試作した。上記グリーンシートにパンチングによりビアホールを形成し、Ag、Ag-Pd、Au、Cu等の低抵抗金属粉体からなるペーストをスクリーン印刷法によりビアに充填、さらに所望のパターンを印刷し、回路を形成する。次いで各層を熱圧着法により積層し、切断後、焼成を行う。Ag、Ag-Pd、Au導体の場合は、大気中もしくは中性雰囲気中で100~200°C/hの昇温速度で850~1000°C

まで上げ、この温度で1~3時間保持し、多層基板を得る。Cu導体の場合は、弱酸化性もしくは非酸化性雰囲気中で脱バインダーを完全に行った後、Cuの酸化防止のために水素を含む還元性雰囲気中もしくは中性雰囲気中850~1050°Cで焼成を行う。こうして得られた多層基板の配線抵抗は低く、導体層の接着強度も十分であった。また、導体層の半田濡れ性も良好であり、強固なリード付が可能であった。

## 【手続補正書】

【提出日】平成5年11月21日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$Li_2O$  : 0～2%

$Na_2O$  : 0～2%

$K_2O$  : 0～2%

但し、 $Li_2O+Na_2O+K_2O$  : 1～4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項2】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$Li_2O$  : 0～2%

$Na_2O$  : 0～2%

$K_2O$  : 0～2%

但し、 $Li_2O+Na_2O+K_2O$  : 1～4%

(少なくとも2種必須)

銅、バナジウム、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種：0.1～5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項3】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$Li_2O$  : 0～2%

$Na_2O$  : 0～2%

$K_2O$  : 0～2%

但し、 $Li_2O+Na_2O+K_2O$  : 1～4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、銅、バナジウム、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1～5重量部をフィラーとして添加、混合した低温焼成基板用組成物。

【請求項4】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$Li_2O$  : 0～2%

$Na_2O$  : 0～2%

$K_2O$  : 0～2%

但し、 $Li_2O+Na_2O+K_2O$  : 1～4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中もしくは中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項5】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$Li_2O$  : 0～2%

$Na_2O$  : 0～2%

$K_2O$  : 0～2%

但し、 $Li_2O+Na_2O+K_2O$  : 1～4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中もしくは中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項6】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォスフェライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量％表示で：

$Al_2O_3$  : 45～58%

$SiO_2$  : 20～35%

$B_2O_3$  : 5～15%

$MgO$  : 5～20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ : 1~4%

(少なくとも2種必須)

銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種: 0.1~5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項7】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で:

$\text{Al}_2\text{O}_3$  : 45~58%

$\text{SiO}_2$  : 20~35%

$\text{B}_2\text{O}_3$  : 5~15%

$\text{MgO}$  : 5~20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ : 1~4%

(少なくとも2種必須)

モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内少なくとも1種: 0.1~5% からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項8】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で:

$\text{Al}_2\text{O}_3$  : 45~58%

$\text{SiO}_2$  : 20~35%

$\text{B}_2\text{O}_3$  : 5~15%

$\text{MgO}$  : 5~20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ : 1~4%

(少なくとも2種必須)

バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物の内少なくとも1種: 0.1~5%

からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末を成形し、その上にAg、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項9】 熱処理することによりムライトを主結

晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で:

$\text{Al}_2\text{O}_3$  : 45~58%

$\text{SiO}_2$  : 20~35%

$\text{B}_2\text{O}_3$  : 5~15%

$\text{MgO}$  : 5~20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ : 1~4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1~5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にAg、Ag-Pd、Auのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、大気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項10】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で:

$\text{Al}_2\text{O}_3$  : 45~58%

$\text{SiO}_2$  : 20~35%

$\text{B}_2\text{O}_3$  : 5~15%

$\text{MgO}$  : 5~20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ : 1~4%

(少なくとも2種必須) からなる低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1~5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にCuを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、水素を含む還元性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項11】 熱処理することによりムライトを主結晶相とし、フォルステライト、スピネル及びサフィリンの内少なくとも1種を副結晶相として析出するガラスであって、酸化物の重量%表示で:

$\text{Al}_2\text{O}_3$  : 45~58%

$\text{SiO}_2$  : 20~35%

$\text{B}_2\text{O}_3$  : 5~15%

$\text{MgO}$  : 5~20%

$\text{Li}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{Na}_2\text{O}$  : 0~2%

$\text{K}_2\text{O}$  : 0~2%

但し、 $Li_2O + Na_2O + K_2O : 1 \sim 4\%$

(少なくとも2種必須) からの低温焼成基板用ガラス組成物の粉末100重量部に対し、バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物粉末、金属塩化合物粉末、金属粉末の内少なくとも1種0.1～5重量部をフィラーとして添加、混合して成形し、その上にAg、Ag-Pd、Au、Cuのいずれかを主成分とする導体ペーストで配線を形成した後、中性雰囲気中で焼成して作製される低温焼成基板。

【請求項12】 ガラスの熱処理後、抗折強度が $23 \text{ kgf/mm}^2$ 以上であることを特徴とする請求項1または2に記載の低温焼成基板用ガラス組成物。

【請求項13】 ガラスとフィラーの混合物の熱処理後、抗折強度が $23 \text{ kgf/mm}^2$ 以上であることを特徴とする請求項3に記載の低温焼成基板用組成物。

【請求項14】 抗折強度が $23 \text{ kgf/mm}^2$ 以上であることを特徴とする請求項4乃至11のいずれかに記載の低温焼成基板。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正内容】

【0018】着色基板を得るためには、上記基本成分の他に以下の着色成分をガラス組成中に加えても良い。銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物は大気中で焼成を行う場合の着色成分である。銅、バナジウム、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種が必要である。そしてその合計量が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆にその合計量が5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正内容】

【0019】また、モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物は水素を含む還元性雰囲気中で焼成を行う場合の着色成分である。モリブデン、タングステン、鉄、ニッケル、マンガン、コバルトの酸化物の内、少なくとも1種が必要である。そしてその合計量が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆にその合計量が5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正内容】

【0020】また、バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物は中性雰囲気中で焼成を行う場合の着色成分である。バナジウム、モリブデン、鉄の酸化物の内、少なくとも1種が必要である。そしてその合計量が0.1wt%未満では着色が不十分で外観上好ましくない。逆にその合計量が5wt%を越えると焼結性が低下し、強度が劣化する。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0031

【補正方法】変更

【補正内容】

【0031】⑤結晶相

前述の④で得られたサンプルと同じ物を再び微粉体とした後、粉末X線回折により測定した。

フロントページの続き

(72) 発明者 栗林 秀行  
兵庫県西宮市浜松原町2番21号山村硝子株式会社内

(72) 発明者 田中 淳  
鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内

(72) 発明者 小長 智美  
鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内

(72) 発明者 森上 義博  
鹿児島県国分市山下町1番1号京セラ株式会社鹿児島国分工場内